

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
23. August 2001 (23.08.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer
WO 01/60608 A1

(51) Internationale Patentklassifikation⁷: **B32B 27/36**,
27/18

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP01/01303

(22) Internationales Anmeldedatum:
7. Februar 2001 (07.02.2001)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:
100 07 727.7 19. Februar 2000 (19.02.2000) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme
von US): **MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH**
[DE/DE]; Rheingaustrasse 190-196, 65203 Wiesbaden
(DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **MURCHALL, Ur-
sula** [DE/DE]; Im Bacchuswinkel 11, 55283 Nierstein
(DE). **OBERLÄNDER, Klaus** [DE/DE]; Vor dem Wald
7, 65207 Wiesbaden (DE). **CRASS, Günther** [DE/DE];

Bachstrasse 7, 65232 Taunusstein (DE). **KERN, Ulrich**
[DE/DE]; Wilhelm-von-Erlanger-Strasse 23, 55218 In-
gelheim (DE). **PEIFFER, Herbert** [DE/DE]; Thüringer
Strasse 26, 55126 Mainz (DE).

(74) Anwälte: **ZOUNEK, Nikolai** usw.; Patentanwaltskanzlei
Zounek, Industriepark Kalle-Albert, Rheingaustrasse 190-
196, 65203 Wiesbaden (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (national): JP, KR, US.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): europäisches Patent (AT,
BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC,
NL, PT, SE, TR).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden
Frist: Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen
eintreffen

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen
Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on
Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe
der PCT-Gazette verwiesen.

(54) Title: WHITE SEALABLE, UV-STABILIZED, BIAXIALLY ORIENTED POLYESTER FILM, METHOD FOR PRODUC-
ING SAID FILM AND USE OF THE SAME

(54) Bezeichnung: WEISSE, SIEGELFÄHIGE, UV STABILISIERTE, BIAXIAL ORIENTIERTE POLYESTERFOLIE, VER-
FAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG UND IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to a white, sealable, UV-stabilized, co-extruded, biaxially oriented polyester film consisting of
at least one base layer (B) and cover layers (A and C) applied to both sides of the base layer. The film also contains at least one UV
stabilizer as a light protection agent, and a white pigment. The invention also relates to a method for producing the inventive film
and to its use.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft eine weisse, siegelfähige, UV stabilisierte, koextrudierte, biaxial orientierte Polyes-
terfolie bestehend aus mindestens einer Basisschicht B und beidseitig auf dieser Basisschicht aufgetragenen Deckschichten A und C.
Die Folie enthält zusätzlich mindestens einen UV-Stabilisator als Lichtschutzmittel und ein Weisspigment. Die Erfindung beinhaltet
weiterhin ein Verfahren zur Herstellung der Folie und ihre Verwendung.

WO 01/60608 A1

~~Weiß~~e, siegelfähige, UV-stabilisierte, biaxial-orientierte Polyesterfolie, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung

- 5 Die Erfindung betrifft eine weiße, siegelfähige, UV stabilisierte, koextrudierte, biaxial orientierte Polyesterfolie bestehend aus mindestens einer Basisschicht B und beidseitig auf dieser Basisschicht aufgetragenen Deckschichten A und C. Die Folie enthält zusätzlich mindestens einen UV-Stabilisator als Lichtschutzmittel und ein Weißpigment. Die Erfindung beinhaltet weiterhin ein Verfahren zur Herstellung der Folie und ihre Verwendung.
- 10 Die Folien und daraus hergestellte Artikel eignen sich insbesondere für Außenanwendungen, wie z.B. für Gewächshäuser und Überdachungen. Weiterhin eignen sich die Folien sehr gut für die Abdeckung und somit zum Schutz von metallischen Oberflächen, auf die die Folien heißgesiegelt werden. Bei Außenanwendungen zeigen
- 15 Folien, die keine UV absorbierende Materialien enthalten, bereits nach kurzer Zeit eine Vergilbung und eine Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften infolge eines photooxidativen Abbaus durch das Sonnenlicht.

Die Folie zeichnet sich durch ihr charakteristisches weißes Erscheinungsbild aus, wodurch sie für die genannten Anwendungen besonders attraktiv wird.

- 20 Siegelfähige, biaxial orientierte Polyesterfolien sind nach dem Stand der Technik bekannt. Ebenfalls bekannt sind siegelfähige, biaxial orientierte Polyesterfolien, die mit einem oder mit mehreren UV-Absorbern ausgerüstet sind. Diese nach dem Stand der Technik bekannten Folien zeichnen sich entweder durch ein gutes Siegelverhalten, eine gute Optik
- 25 oder durch ein akzeptables Verarbeitungsverhalten aus.

In der **GB-A 1 465 973** wird eine koextrudierte, zweischichtige Polyesterfolie beschrieben, deren eine Schicht aus isophthalsäurehaltigen und terephthalsäurehaltigen Copolyestern und deren andere Schicht aus Polyethylenterephthalat besteht. Über das Siegelverhalten der Folie finden sich in der Schrift keine verwertbaren Angaben. Wegen fehlender
5 Pigmentierung ist die Folie nicht prozesssicher herstellbar (Folie ist nicht wickelbar) und nur unter Einschränkung weiterverarbeitbar.

In der **EP-A 0 035 835** wird eine koextrudierte siegelfähige Polyesterfolie beschrieben, der zur Verbesserung des Wickel- und des Verarbeitungsverhaltens in der Siegelschicht
10 Partikel beigelegt werden, deren mittlere Teilchengröße die Schichtdicke der Siegelschicht übersteigt. Durch die teilchenförmigen Zusatzstoffe werden Oberflächenvorsprünge gebildet, die das unerwünschte Blocken und Kleben an Walzen oder Führungen verhindern. Über die andere, nicht siegelfähige Schicht der Folie, werden
15 keine näheren Angaben zur Einarbeitung von Antiblockmitteln gemacht. Es bleibt offen, ob diese Schicht Antiblockmittel enthält. Durch Wahl von Partikeln mit größerem Durchmesser als die Siegelschicht und den in den Beispielen angegebenen Konzentrationen wird das Siegelverhalten der Folie verschlechtert. Angaben zum Siegeltemperaturbereich der Folie werden in der Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C
20 gemessen und liegt in einem Bereich von 63 bis 120 N/m (0,97 N/15 mm bis 1,8 N/15 mm Folienbreite).

In der **EP-A 0 432 886** wird eine koextrudierte mehrschichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine erste Oberfläche besitzt, auf der eine siegelfähige Schicht angeordnet ist und eine zweite Oberfläche besitzt, auf der eine Acrylatschicht angeordnet ist. Die siegelfähige
25 Deckschicht kann auch hier aus isophthalsäurehaltigen und terephthalsäurehaltigen Copolyestern bestehen. Durch die rückseitige Beschichtung erhält die Folie ein verbessertes Verarbeitungsverhalten. Angaben zum Siegelbereich der Folie werden in der Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C gemessen. Für eine 11 µm

- 3 -

dicke Siegelschicht wird eine Siegelnahtfestigkeit von 761,5 N/m (11,4 N/15 mm) angegeben. Nachteilig an der rückseitigen Acrylatbeschichtung ist, daß diese Seite gegen die siegelfähige Deckschicht nicht mehr siegelt. Die Folie ist damit nur sehr eingeschränkt zu verwenden.

5

In der **EP-A 0 515 096** wird eine koextrudierte, mehrschichtige siegelfähige Polyesterfolie beschrieben, die auf der siegelfähigen Schicht ein zusätzliches Additiv enthält. Das Additiv kann z.B. anorganische Partikel enthalten und wird vorzugsweise in einer wässrigen Schicht an die Folie bei deren Herstellung herangetragen. Hierdurch soll die Folie die guten Siegeleigenschaften beibehalten und gut zu verarbeiten sein. Die Rückseite enthält nur sehr wenige Partikel, die hauptsächlich über das Regranulat in diese Schicht gelangen. Angaben zum Siegeltemperaturbereich der Folie werden auch in dieser Schrift nicht gemacht. Die Siegelnahtfestigkeit wird bei 140 °C gemessen und beträgt mehr als 200 N/m (3 N/15 mm). Für eine 3 µm dicke Siegelschicht wird eine Siegelnahtfestigkeit von 275 N/m (4,125 N/15 mm) angegeben.

10

15

20

25

In der **WO 98/06575** wird eine koextrudierte mehrschichtige Polyesterfolie beschrieben, die eine siegelfähige Deckschicht und eine nicht siegelfähige Basisschicht enthält. Die Basisschicht kann dabei aus einer oder mehreren Schichten aufgebaut sein, wobei die innere der Schichten mit der siegelfähigen Schicht in Kontakt ist. Die andere (äußere) Schicht bildet dann die zweite nicht siegelfähige Deckschicht. Die siegelfähige Deckschicht kann auch hier aus isophthalsäurehaltigen und terephthalsäurehaltigen Copolyestern bestehen, die jedoch keine Antiblockteilchen enthalten. Die Folie enthält außerdem noch mindestens einen UV-Absorber, der der Basisschicht in einem Gewichtsverhältnis von 0,1 bis 10 % zugegeben wird. Als UV Absorber werden dabei vorzugsweise Triazine, z.B. ®Tinuvin 1577 der Fa. Ciba Geigy (Basel, Schweiz) verwendet. Die Basisschicht ist mit üblichen Antiblockmitteln ausgestattet. Die Folie zeichnet sich durch eine gute Siegelfähigkeit aus, hat jedoch nicht das gewünschte Verarbeitungsverhalten und weist

zudem Defizite in den optischen Eigenschaften auf. Die Folie kann zudem eine matte Oberfläche aufweisen, sie besitzt dann aber eine hohe Trübung, die unerwünscht ist.

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es, eine weiße, siegelfähige, UV-stabilisierte und biaxial orientierte Polyesterfolie bereitzustellen, die die Nachteile der genannten Folien nach dem Stand der Technik nicht aufweist und sich insbesondere durch eine sehr gute Siegelfähigkeit, eine wirtschaftliche Herstellung, eine verbesserte Verarbeitbarkeit und verbesserte optische Eigenschaften auszeichnet.

Es war Aufgabe der vorliegenden Erfindung, den Siegelbereich der Folie auf niedrige Temperaturen zu erweitern, die Siegelnahtfestigkeit der Folie zu erhöhen und gleichzeitig für ein verbessertes Handling der Folie zu sorgen als es nach dem Stand der Technik bekannt ist. Außerdem muss gewährleistet sein, daß die Folie auch auf schnelllaufenden Verarbeitungsmaschinen verarbeitet werden kann. Bei der Herstellung der Folie soll immanent anfallendes Regenerat in einer Konzentration bis zu 60 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, der Extrusion zugeführt werden können, ohne daß dabei die physikalischen Eigenschaften der Folie nennenswert negativ beeinflusst werden.

Zu den guten mechanischen Eigenschaften zählt unter anderem eine hoher E-Modul ($E_{MD} > 3200 \text{ N/mm}^2$; $E_{TD} > 3500 \text{ N/mm}^2$) sowie gute Reißfestigkeitswerte (in MD $> 100 \text{ N/mm}^2$; in TD $> 130 \text{ N/mm}^2$).

Da die Folie insbesondere für die Außenanwendung und/oder kritische Innenanwendungen gedacht ist, sollte sie eine hohe UV-Stabilität aufweisen. Eine hohe UV-Stabilität bedeutet, daß die Folien durch Sonnenlicht oder andere UV-Strahlung nicht oder nur extrem wenig geschädigt werden. Insbesondere sollen die Folien bei mehrjähriger Außenanwendung nicht vergilben, keine Versprödung oder Rissbildung der Oberfläche zeigen und auch keine Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften aufweisen. Hohe UV-Stabilität

- 5 -

bedeutet demnach, daß die Folie das UV-Licht absorbiert und Licht erst im sichtbaren Bereich durchlässt.

Die Aufgabe wird erfindungsgemäß durch die Bereitstellung einer weißen, siegelfähigen, UV stabilisierten, biaxial orientierten, siegelfähigen Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, einer siegelfähigen Deckschicht A und einer weiteren Deckschicht C gelöst, wobei die siegelfähige Deckschicht A eine Siegelanspringtemperatur von $\leq 110^\circ\text{C}$, und eine Siegelnahtfestigkeit von $\geq 1,3 \text{ N/15 mm}$, aufweist. Bevorzugt weist die Deckschicht darüber hinaus noch folgende Eigenschaften auf: eine mittlere Rauigkeit R_a kleiner 30 nm, einen Messwertbereich für die Gasströmung von 500 - 4000 s und einen Glanz von größer 120 (Messwinkel 20°).

Die nicht siegelfähige Deckschicht C weist bevorzugt einen Reibungskoeffizienten COF kleiner 0,5, eine mittlere Rauigkeit R_a von 40 - 100 nm, einen Messwertbereich für die Gasströmung von kleiner 120 s, einen Glanz von kleiner 100 (Messwinkel 20°) und eine Anzahl von Erhebungen N pro mm^2 Folienoberfläche auf, die mit der jeweiligen Höhe h über folgende Gleichungen korreliert sind:

$$A_{C1} - B_{C1} * \log h/\mu\text{m} < N_c/\text{mm}^2 < A_{C2} - B_{C2} * \log h/\mu\text{m}$$

$$0,01 \mu\text{m} < h < 10 \mu\text{m}$$

$$A_{C1} = 0,29 \quad B_{C1} = 3,30$$

$$A_{C2} = 1,84; \quad B_{C2} = 2,70$$

Die Polyesterfolie hat bevorzugt einen Weißgrad von größer 70 und eine planare Orientierung von kleiner 0,165 und die Bewitterungsprüfung/UV-Stabilität nach ISO 4892 ist kleiner 20 %.

Licht, insbesondere der ultraviolette Anteil der Sonnenstrahlung, d. h. der Wellenlängenbereich von 280 bis 400 nm, leitet bei Thermoplasten Abbauvorgänge ein,

als deren Folge sich nicht nur das visuelle Erscheinungsbild infolge von Farbänderung bzw. Vergilbung ändert, sondern auch die mechanisch-physikalischen Eigenschaften negativ beeinflusst werden.

- 5 Die Inhibierung dieser photooxidativen Abbauvorgänge ist von erheblicher technischer und wirtschaftlicher Bedeutung, da andernfalls die Anwendungsmöglichkeiten von zahlreichen Thermoplasten drastisch eingeschränkt sind.

10 Polyethylenterephthalate beginnen beispielsweise schon unterhalb von 360nm UV-Licht zu absorbieren, ihre Absorption nimmt unterhalb von 320 nm beträchtlich zu und ist unterhalb von 300 nm sehr ausgeprägt. Die maximale Absorption liegt zwischen 280 und 300 nm.

15 In Gegenwart von Sauerstoff werden hauptsächlich Kettenspaltungen, jedoch keine Vernetzungen beobachtet. Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Carbonsäuren stellen die mengenmäßig überwiegenden Photooxidationsprodukte dar. Neben der direkten Photolyse der Estergruppen müssen noch Oxidationsreaktionen in Erwägung gezogen werden, die über Peroxidradikale ebenfalls die Bildung von Kohlendioxid zur Folge haben.

20 Die Photooxidation von Polyethylenterephthalaten kann auch über Wasserstoffabspaltung in α -Stellung der Estergruppen zu Hydroperoxiden und deren Zersetzungsprodukten sowie zu damit verbundenen Kettenspaltungen führen (H. Day, D. M. Wiles: J. Appl. Polym. Sci 16, 1972, Seite 203).

25 UV-Stabilisatoren bzw. UV-Absorber als Lichtschutzmittel sind chemische Verbindungen, die in die physikalischen und chemischen Prozesse des lichtinduzierten Abbaus eingreifen können. Ruß und andere Pigmente können teilweise einen Lichtschutz bewirken. Diese Substanzen sind jedoch für transparente Folien ungeeignet, da sie zur Verfärbung oder

- 7 -

Farbänderung führen. Für transparente, matte Folien sind nur organische und metallorganische Verbindungen geeignet, die dem zu stabilisierenden Thermoplasten keine oder nur eine extrem geringe Farbe oder Farbänderung verleihen, d. h. die in dem Thermoplasten löslich sind.

5

10

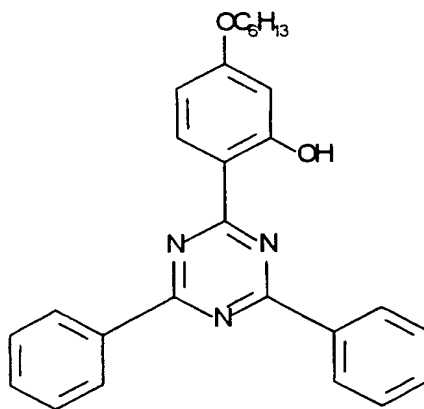
15

Im Sinne der vorliegenden Erfindung geeignete UV-Stabilisatoren als Lichtschutzmittel sind UV-Stabilisatoren, die mindestens 70 %, vorzugsweise 80 %, besonders bevorzugt 90%, des UV-Lichtes im Wellenlängenbereich von 180 nm bis 380 nm, vorzugsweise 280 bis 350 nm absorbieren. Diese sind insbesondere geeignet, wenn sie im Temperaturbereich von 260 bis 300 °C thermisch stabil sind, d. h. sich nicht zersetzen und nicht zur Ausgasung führen. Geeignete UV-Stabilisatoren als Lichtschutzmittel sind beispielsweise 2-Hydroxybenzophenone, 2-Hydroxybenzotriazole, nickelorganische Verbindungen, Salicylsäureester, Zimtsäureester-Derivate, Resorcinmonobenzoate, Oxalsäureanilide, Hydroxybenzoesäureester, sterisch gehinderte Amine und Triazine, wobei die 2-Hydroxybenzotriazole und die Triazine bevorzugt sind.

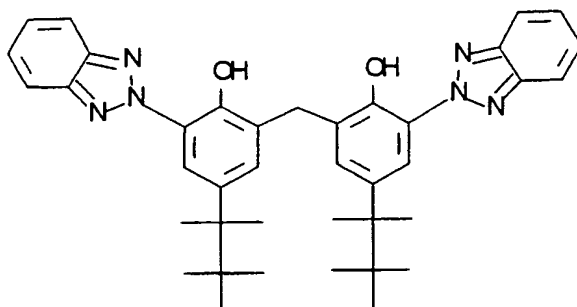
20

25

In einer ganz besonders bevorzugten Ausführungsform enthält die erfindungsgemäße Folie 0,01 Gew.-% bis 5,0 Gew.-% 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol der Formel



oder 0,01 Gew.-% bis 5,0 Gew.-% 2,2-Methylen-bis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,2,2-tetramethylpropyl)-phenol der Formel



10 In einer bevorzugten Ausführungsform können auch Mischungen dieser beiden UV-Stabilisatoren oder Mischungen von mindestens einem dieser beiden UV-Stabilisatoren mit anderen UV-Stabilisatoren eingesetzt werden, wobei die Gesamtkonzentration an Lichtschutzmittel vorzugsweise zwischen 0,01 Gew.-% und 5,0 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht an kristallisierbarem Polyethylenterephthalat, liegt.

15 Der oder die UV-Stabilisatoren sind vorzugsweise in der/den Deckschichten enthalten. Bei Bedarf kann auch die Kernschicht mit UV-Stabilisator ausgerüstet sein.

20 Es war völlig überraschend, daß der Einsatz der oben genannten UV-Stabilisatoren in Folien zu dem gewünschten Ergebnis führte. Der Fachmann hätte vermutlich zunächst versucht, eine gewisse UV-Stabilität über ein Antioxidanz zu erreichen, hätte jedoch bei Bewitterung festgestellt, daß die Folie schnell gelb wird.

25 Vor dem Hintergrund, daß UV-Stabilisatoren das UV-Licht absorbieren und somit Schutz bieten, hätte der Fachmann wohl handelsübliche Stabilisatoren eingesetzt. Dabei hätte er festgestellt, daß

- der UV-Stabilisator eine mangelnde thermische Stabilität hat und sich bei Temperaturen zwischen 200 °C und 240 °C zersetzt und ausgast;

- 9 -

- er große Mengen (ca. 10 bis 15 Gew.-%) UV-Stabilisator einarbeiten muß, damit das UV-Licht absorbiert wird und damit die Folie nicht geschädigt wird.

Bei diesen hohen Konzentrationen hätte er festgestellt, daß die Folie schon nach der Herstellung gelb ist, bei Gelbwertunterschieden (YID) um die 25. Desweiteren hätte er festgestellt, daß die mechanischen Eigenschaften negativ beeinflußt werden. Beim Verstrecken hätte er ungewöhnliche Probleme bekommen wie

- Abrisse wegen mangelnder Festigkeit, d. h. E-Modul zu niedrig;
- Düsenablagerungen, was zu Profilschwankungen führt;
- Walzenablagerungen vom UV-Stabilisator, was zu Beeinträchtigungen der optischen Eigenschaften (Klebedefekte, inhomogene Oberfläche) führt;
- Ablagerungen in Streck-, Fixierrahmen, die auf die Folie tropfen.

Daher war es mehr als überraschend, daß bereits mit niedrigen Konzentrationen des UV-Stabilisators ein hervorragender UV-Schutz erzielt wurde. Sehr überraschend war, daß sich bei diesem hervorragenden UV-Schutz

- der Gelbwert der Folie im Vergleich zu einer nicht stabilisierten Folie im Rahmen der Meßgenauigkeit nicht ändert;
- sich keine Ausgasungen, keine Düsenablagerungen, keine Rahmenausdampfungen einstellen, wodurch die Folie eine exzellente Optik aufweist und ein ausgezeichnetes Profil und eine ausgezeichnete Planlage hat;
- sich die UV-stabilisierte Folie durch eine hervorragende Streckbarkeit auszeichnet, so daß sie verfahrenssicher und stabil auf high speed film lines bis zu Geschwindigkeiten von 420 m/min produktionssicher hergestellt werden kann.

Erfindungsgemäß ist die Folie zumindest dreischichtig und umfaßt dann als Schichten die Basisschicht B, die siegelfähige Deckschicht A und die Deckschicht C.

Die Basisschicht B der Folie besteht bevorzugt zu mindestens 90 Gew.-% aus einem thermoplastischen Polyester. Dafür geeignet sind Polyester aus Ethylenglykol und Terephthalsäure (= Polyethylenterephthalat, PET), aus Ethylenglykol und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalat, PEN), aus 1,4-Bis-hydroxymethyl-cyclohexan und Terephthalsäure (= Poly-1,4-cyclohexandimethylenterephthalat, PCDT) sowie aus Ethylenglykol, Naphthalin-2,6-dicarbonsäure und Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure (= Polyethylen-2,6-naphthalatbibenzoat, PENBB). Besonders bevorzugt sind Polyester, die zu mindestens 90 Mol-%, bevorzugt mindestens 95 Mol-%, aus Ethylenglykol- und Terephthalsäure-Einheiten oder aus Ethylenglykol- und Naphthalin-2,6-dicarbonsäure-Einheiten bestehen. Die restlichen Monomereinheiten stammen aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren, wie sie auch in der Schicht A (oder der Schicht C) vorkommen können.

Geeignete andere aliphatische Diole sind beispielsweise Diethylenglykol, Triethylenglykol, aliphatische Glykole der allgemeinen Formel $\text{HO}-(\text{CH}_2)_n-\text{OH}$, wobei n eine ganze Zahl von 3 bis 6 darstellt (insbesondere Propan-1,3-diol, Butan-1,4-diol, Pentan-1,5-diol und Hexan-1,6-diol) oder verzweigte aliphatische Glykole mit bis zu 6 Kohlenstoff-Atomen. Von den cycloaliphatischen Diolen sind Cyclohexandiole (insbesondere Cyclohexan-1,4-diol) zu nennen. Geeignete andere aromatische Diole entsprechen beispielsweise der Formel $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{X}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$, wobei X für $-\text{CH}_2-$, $-\text{C}(\text{CH}_3)_2-$, $-\text{C}(\text{CF}_3)_2-$, $-\text{O}-$, $-\text{S}-$ oder $-\text{SO}_2-$ steht. Daneben sind auch Bisphenole der Formel $\text{HO}-\text{C}_6\text{H}_4-\text{C}_6\text{H}_4-\text{OH}$ gut geeignet.

Andere aromatische Dicarbonsäuren sind bevorzugt Benzoldicarbonsäuren, Naphthalindicarbonsäuren (beispielsweise Naphthalin-1,4- oder 1,6-dicarbonsäure), Biphenyl-x,x'-dicarbonsäuren (insbesondere Biphenyl-4,4'-dicarbonsäure), Diphenylacetylen-x,x'-dicarbonsäuren (insbesondere Diphenylacetylen-4,4'-dicarbonsäure) oder Stilben-x,x'-dicarbonsäuren. Von den cycloaliphatischen Dicarbonsäuren sind Cyclohexandicarbonsäuren (insbesondere Cyclohexan-1,4-dicarbonsäure) zu nennen. Von

den aliphatischen Dicarbonsäuren sind die (C_3 - C_{19}) Alkandisäuren besonders geeignet, wobei der Alkanteil geradkettig oder verzweigt sein kann.

Die Herstellung der Polyester kann z.B. nach dem Umesterungsverfahren erfolgen. Dabei geht man von Dicarbonsäureestern und Diolen aus, die mit den üblichen Umesterungskatalysatoren, wie Zink-, Calcium-, Lithium-, Magnesium- und Mangan-Salzen, umgesetzt werden. Die Zwischenprodukte werden dann in Gegenwart allgemein üblicher Polykondensationskatalysatoren, wie Antimontrioxid oder Titan-Salzen, polykondensiert. Die Herstellung kann ebenso gut nach dem Direktveresterungsverfahren in Gegenwart von Polykondensationskatalysatoren erfolgen. Dabei geht man direkt von den Dicarbonsäuren und den Diolen aus.

Die durch Koextrusion auf die Basisschicht B aufgebrachte siegelfähige Deckschicht A ist auf Basis von Polyester copolymeren aufgebaut und besteht im wesentlichen aus Copolyestern, die überwiegend aus Isophthalsäure- und Terephthalsäure-Einheiten und aus Ethylenglykol-Einheiten zusammengesetzt sind. Die restlichen Monomereinheiten stammen aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren, wie sie auch in der Basisschicht vorkommen können. Die bevorzugten Copolyester, die die gewünschten Siegeleigenschaften bereitstellen, sind solche, die aus Ethylenterephthalat- und Ethylenisophthalat-Einheiten und aus Ethylenglykol-Einheiten aufgebaut sind. Der Anteil an Ethylenterephthalat beträgt 40 bis 95 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 60 bis 5 Mol-%. Bevorzugt sind Copolyester, bei denen der Anteil an Ethylenterephthalat 50 bis 90 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 50 bis 10 Mol-% beträgt und ganz bevorzugt sind Copolyester, bei denen der Anteil an Ethylenterephthalat 60 bis 85 Mol-% und der entsprechende Anteil an Ethylenisophthalat 40 bis 15 Mol-% beträgt.

- 12 -

Für die andere, nicht siegelfähige Deckschicht C oder für eventuell vorhandene Zwischenschichten können prinzipiell die gleichen Polymere verwendet werden, wie zuvor für die Basisschicht B beschrieben wurde.

- 5 Die gewünschten Siegel- und die gewünschten Verarbeitungseigenschaften der erfindungsgemäßen Folie werden aus der Kombination der Eigenschaften des verwendeten Copolyesters für die siegelfähige Deckschicht und den Topographien der siegelfähigen Deckschicht A und der nicht siegelfähigen Deckschicht C erhalten.
- 10 Die Siegelanspringtemperatur von $\leq 110^{\circ}\text{C}$ und der Siegelnahtfestigkeit von $\geq 1,3 \text{ N/15mm}$ wird erreicht, wenn für die siegelfähige Deckschicht A die oben näher beschriebene Copolymere verwendet werden. Die besten Siegeleigenschaften der Folie erhält man, wenn dem Copolymeren keine weiteren Additive, insbesondere keine anorganische oder organische Filler zugegeben werden. Für diesen Fall erhält man bei vorgegebenem
- 15 Copolyester die niedrigste Siegelanspringtemperatur und die höchsten Siegelnahtfestigkeiten. Allerdings ist in diesem Fall das Handling der Folie schlecht, da die Oberfläche der siegelfähigen Deckschicht A stark zum Verblocken neigt. Die Folie lässt sich kaum wickeln und ist für eine Weiterverarbeitung auf schnelllaufenden Verpackungsmaschinen nicht geeignet. Zur Verbesserung des Handlings der Folie und der
- 20 Verarbeitbarkeit ist es notwendig, die siegelfähige Deckschicht A zu modifizieren. Dies geschieht am besten mit Hilfe von geeigneten Antiblockmitteln einer ausgewählten Größe, die in einer bestimmten Konzentration der Siegelschicht zugegeben werden und zwar derart, daß einerseits das Verblocken minimiert und andererseits die Siegeleigenschaften nur unwesentlich verschlechtert werden. Diese gewünschte Eigenschaftskombination lässt
- 25 sich erreichen, wenn die Topographie der siegelfähigen Deckschicht A bevorzugt durch den folgenden Satz von Parametern gekennzeichnet ist:

- Die Rauigkeit der siegelfähigen Deckschicht, gekennzeichnet durch den R_a -Wert, sollte kleiner als 30 nm sein. Im anderen Fall werden die Siegeleigenschaften im Sinne der vorliegenden Erfindung negativ beeinflusst.
- Der Messwert der Gasströmung sollte im Bereich von 500-4000 s liegen. Bei Werten unterhalb von 500 s werden die Siegeleigenschaften im Sinne der vorliegenden Erfindung negativ beeinflusst und bei Werten oberhalb von 4000 s wird das Handling der Folie schlecht.

Um das Verarbeitungsverhalten der siegelfähigen Folie weiterhin zu verbessern, sollte die Topographie der nicht siegelfähigen Deckschicht C bevorzugt durch den folgenden Satz von Parametern gekennzeichnet sein:

- Der Reibungskoeffizient (COF) dieser Seite gegen sich selbst sollte kleiner als 0,5 sein. Andernfalls ist das Wickelverhalten und die Weiterverarbeitung der Folie unbefriedigend.
- Die Rauigkeit der nicht siegelfähigen Deckschicht, gekennzeichnet durch den R_a -Wert, sollte ≥ 40 nm und ≤ 100 nm sein. Kleinere Werte als 40 nm haben negative Auswirkungen auf das Wickel- und Verarbeitungsverhalten der Folie und größere Werte als 100 nm beeinträchtigen die optischen Eigenschaften (Glanz) der Folie.
- Der Messwert der Gasströmung sollte im Bereich unterhalb von 120 s liegen. Bei Werten ab 120 s wird das Wickel- und das Verarbeitungsverhalten der Folie negativ beeinflusst.
- Die Anzahl der Erhebungen N pro mm^2 Folienoberfläche ist mit der jeweiligen Höhe h über die folgende Gleichung korreliert:

$$0,29 - 3,30 * \log h/\mu\text{m} < \log N/\text{mm}^2 < 1,84 - 2,70 * \log h/\mu\text{m}$$

$$0,01 \mu\text{m} < h < 10 \mu\text{m}$$

Sind die Werte für N kleiner als der linken Seite der Gleichung entspricht, so wird das Wickel- und das Verarbeitungsverhalten der Folie negativ beeinflusst, sind die

Werte für N größer als es der rechten Seite der Gleichung entspricht, so wird der Glanz der Folie negativ beeinflusst.

5 In der dreischichtigen Ausführungsform ist der UV-Stabilisator vorzugsweise in der nicht siegelfähigen Deckschicht C enthalten. Jedoch kann nach Bedarf auch die Basisschicht B oder auch die siegelfähige Deckschicht A mit UV-Stabilisatoren ausgerüstet sein. Die Konzentration des oder der Stabilisatoren bezieht sich dabei auf das Gewicht der Thermoplasten in der mit UV-Stabilisator (en) ausgerüsteten Schicht.

10 Überraschenderweise haben Bewitterungsversuche nach der Testspezifikation ISO 4892 mit dem Atlas CI65 Weather Ometer gezeigt, daß es im Falle der vorgenannten dreischichtigen Folie durchaus ausreichend ist, die 0,3 µm bis 2,5 µm dicken Deckschicht(en) mit UV-Stabilisatoren auszurüsten, um eine verbesserte UV-Stabilität zu erreichen.

15 Bewitterungstests haben ergeben, daß die erfindungsgemäß UV-stabilisierten Folien selbst bei Bewitterungstests nach hochgerechnet 5 bis 7 Jahren Außenanwendung im allgemeinen keine Vergilbung, keine Versprödung, keinen Glanzverlust der Oberfläche, keine Rissbildung an der Oberfläche und keine Verschlechterung der mechanischen
20 Eigenschaften aufweisen.

Das Lichtschutzmittel kann bereits beim Thermoplast-Rohstoffhersteller zudosiert werden oder bei der Folienherstellung in den Extruder dosiert werden.

25 Besonders bevorzugt ist die Zugabe des Lichtschutzmittels über die Masterbatch-Technologie. Das Lichtschutzmittel wird in einem festen Trägermaterial voll dispergiert. Als Trägermaterialien kommt das Polyethylenterephthalat selbst oder auch andere Polymere, die mit dem Thermoplasten ausreichend verträglich sind, in Frage.

Wichtig bei der Masterbatch-Technologie ist, daß die Korngröße und das Schüttgewicht des Masterbatches ähnlich der Korngröße und dem Schüttgewicht des Thermoplasten ist, so daß eine homogene Verteilung und damit eine homogene UV-Stabilisierung erfolgen kann.

5

Die Basisschicht B kann zusätzlich übliche Additive, wie beispielsweise Stabilisatoren und/oder Antiblockmittel enthalten. Die beiden anderen Schichten A und C enthalten ebenfalls zusätzlich übliche Additive, wie beispielsweise Stabilisatoren und/oder Antiblockmittel. Sie werden zweckmäßig dem Polymer bzw. der Polymermischung bereits vor dem Aufschmelzen zugesetzt. Als Stabilisatoren werden beispielsweise Phosphorverbindungen, wie Phosphorsäure oder Phosphorsäureester, eingesetzt.

10

Typische Antiblockmittel (in diesem Zusammenhang auch als Pigmente bezeichnet) sind anorganische und/oder organische Partikel, beispielsweise Calciumcarbonat, amorphe Kieselsäure, Talk, Magnesiumcarbonat, Bariumcarbonat, Calciumsulfat, Bariumsulfat, Lithiumphosphat, Calciumphosphat, Magnesiumphosphat, Aluminiumoxid, LiF, Calcium-, Barium-, Zink- oder Mangan-Salze der eingesetzten Dicarbonsäuren, Ruß, Titandioxid, Kaolin oder vernetzte Polystyrol- oder Acrylat-Partikel.

15

Als Antiblockmittel können auch Mischungen von zwei und mehreren verschiedenen Antiblockmitteln oder Mischungen von Antiblockmitteln gleicher Zusammensetzung, aber unterschiedlicher Partikelgröße gewählt werden. Die Partikel können den einzelnen Schichten in den jeweils vorteilhaften Konzentrationen, z.B. als glykolische Dispersion während der Polykondensation oder über Masterbatche bei der Extrusion zugegeben werden.

20

25

Bevorzugte Partikel sind SiO_2 in kolloidaler und in kettenartiger Form. Diese Partikel werden sehr gut in die Polymermatrix eingebunden und erzeugen nur geringfügig

Vakuolen. Die Partikeldurchmesser der eingesetzten Teilchen sind prinzipiell nicht eingeschränkt. Für die Lösung der Aufgabe hat es sich jedoch als zweckmäßig erwiesen, Teilchen mit einem mittleren Primärpartikeldurchmesser von kleiner als 100 nm, bevorzugt kleiner als 60 nm und besonders bevorzugt kleiner als 50 nm und/oder Teilchen mit einem
5 mittleren Primärpartikeldurchmesser von größer als 1 µm, bevorzugt größer als 1,5 µm und besonders bevorzugt größer als 2 µm zu verwenden. Diese zuletzt beschriebenen Teilchen sollten jedoch keinen mittleren Partikeldurchmesser aufweisen, der größer ist als 5 µm.

Zur Erzielung der vorgenannten Eigenschaften, insbesondere des gewünschten
10 Weißgrades der Folie, enthält die Basisschicht die dazu notwendige Pigmentierung. Geeignete Weißpigmente sind vorzugsweise Titandioxid, Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Kaolin, Siliciumdioxid, wobei Titandioxid und Bariumsulfat bevorzugt sind. Hierbei hat es sich als besonders günstig erwiesen, Bariumsulfat in einer Korngröße von 0,3-0,8 µm, vorzugsweise 0,4-0,7 µm auszuwählen. Die Folie erhält hierdurch ein brillantes weißes
15 Aussehen, ohne gelbstichig zu sein.

Das Weißpigment wird ebenfalls bevorzugt über die Masterbatch-Technologie zudosiert, kann aber auch direkt beim Rohstoffhersteller eingearbeitet werden. Die Konzentration des Weißpigments liegt zwischen 12 Gew.-% und 40 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 14
20 Gew.-% und 35 Gew.-%, besonders bevorzugt zwischen 16 Gew.-% und 25 Gew.-% bezogen auf das Gewicht der Schicht des verwendeten Polyesters.

In der vorteilhaften Verwendungsform besteht die Folie aus drei Schichten, der Basisschicht B und beidseitig auf dieser Basisschicht aufgetragenen Deckschichten A und
25 C, wobei die Deckschicht A gegen sich selbst und gegen die Deckschicht C siegelfähig ist.

Zur Erzielung des genannten Eigenschaftsprofils der Folie weist die Deckschicht C mehr Pigmente (d.h. höhere Pigmentkonzentration) als die Deckschicht A auf. Die

- 17 -

Pigmentkonzentration in dieser zweiten Deckschicht C liegt zwischen 0,1 und 1,0 %, vorteilhaft zwischen 0,12 und 0,8 % und insbesondere zwischen 0,15 und 0,6 %. Die andere, der Deckschicht C gegenüberliegenden, siegelfähige Deckschicht A ist dagegen weniger mit inerten Pigmenten gefüllt. Die Konzentration der inerten Partikeln in der Schicht A liegt zwischen 0,01 und 0,2 Gew.-%, vorzugsweise zwischen 0,015 und 0,15 Gew.-% und insbesondere zwischen 0,02 und 0,1 Gew.-%.

Zwischen der Basisschicht und den Deckschichten kann sich gegebenenfalls jeweils noch eine Zwischenschicht befinden. Diese kann wiederum aus den für die Basisschichten beschriebenen Polymeren bestehen. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform besteht sie aus dem für die Basisschicht verwendeten Polyester. Sie kann auch die beschriebenen üblichen Additive enthalten. Die Dicke der Zwischenschicht ist im allgemeinen größer als 0,3 μm und liegt vorzugsweise im Bereich von 0,5 bis 15 μm , insbesondere im Bereich von 1,0 bis 10 μm und ganz besonders bevorzugt im Bereich von 1,0 bis 5 μm .

Bei der besonders vorteilhaften dreischichtigen Ausführungsform der erfindungsgemäßen Folie ist die Dicke der Deckschichten A und C im allgemeinen größer als 0,1 μm und liegt allgemein im Bereich von 0,2 bis 4,0 μm , vorteilhaft im Bereich von 0,2 bis 3,5 μm , insbesondere im Bereich von 0,3 bis 3 μm und ganz besonders bevorzugt im Bereich von 0,3 bis 2,5 μm , wobei die Deckschichten A und C gleich oder verschieden dick sein können.

Die Gesamtdicke der erfindungsgemäßen Polyesterfolie kann variieren. Sie beträgt 5 bis 350 μm , insbesondere 5 bis 300 μm , vorzugsweise 5 bis 250 μm , wobei die Schicht B einen Anteil von vorzugsweise 5 bis 90 % an der Gesamtdicke hat.

Die Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Polyesterfolie nach dem an sich bekannten Koextrusionsverfahren.

Die Polymere für die Basisschicht B und die beiden Deckschichten A und C werden drei Extrudern zugeführt. Etwa vorhandene Fremdkörper oder Verunreinigungen lassen sich aus der Polymerschmelze vor der Extrusion abfiltrieren. Die Schmelzen werden dann in einer Mehrschichtdüse zu flachen Schmelzefilmen ausgeformt und übereinander geschichtet. Anschließend wird der Mehrschichtfilm mit Hilfe einer Kühlwalze und gegebenenfalls weiteren Walzen abgezogen und verfestigt.

Die Folie wird anschließend biaxial gestreckt (orientiert), thermofixiert und gegebenenfalls an der zur Behandlung vorgesehenen Oberflächenschicht corona- oder flammbehandelt.

Die biaxiale Verstreckung wird im allgemeinen sequentiell durchgeführt. Dabei wird vorzugsweise erst in Längsrichtung (d.h. in Maschinenrichtung, = MD-Richtung) und anschließend in Querrichtung (d.h. senkrecht zur Maschinenrichtung, = TD-Richtung) verstreckt. Dies führt zu einer Orientierung der Molekülketten. Das Verstrecken in Längsrichtung lässt sich mit Hilfe zweier entsprechend dem angestrebten Streckverhältnis verschieden schnell laufenden Walzen durchführen. Zum Querverstrecken benutzt man allgemein einen entsprechenden Kluppenrahmen.

Die Temperatur, bei der die Verstreckung durchgeführt wird, kann in einem relativ großen Bereich variieren und richtet sich nach den gewünschten Eigenschaften der Folie. Im allgemeinen wird die Längsstreckung bei 80 bis 130 °C und die Querstreckung bei 90 bis 150 °C durchgeführt. Das Längsstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 2,5:1 bis 6:1, bevorzugt von 3:1 bis 5,5:1. Das Querstreckverhältnis liegt allgemein im Bereich von 3,0:1 bis 5,0:1, bevorzugt von 3,5:1 bis 4,5:1. Vor der Querstreckung kann man eine oder beide Oberfläche(n) der Folie nach den bekannten Verfahren in-line beschichten. Die In-

Line-Beschichtung kann beispielsweise zu einer verbesserten Haftung der Metallschicht oder einer eventuell aufgetragenen Druckfarbe, aber auch zur Verbesserung des antistatischen Verhaltens oder des Verarbeitungsverhaltens dienen.

- 5 Für die Herstellung einer Folie mit sehr guten Siegeleigenschaften hat es sich als günstig erwiesen, wenn die planare Orientierung p der Folie kleiner ist als $\Delta p = 0,165$, besonders aber kleiner ist als $\Delta p = 0,163$. In diesem Fall ist die Festigkeit der Folie in Dickenrichtung so groß, daß bei der Messung der Siegelnahtfestigkeit definitiv die Siegelnaht aufgetrennt wird und die Folie nicht einreißt und weiterreißt.

- 10 Es hat sich herausgestellt, daß die wesentlichen Einflussgrößen auf die planare Orientierung Δp die Verfahrensparameter in der Längsstreckung und in der Querstreckung sind, sowie der SV-Wert des verwendeten Rohstoffes. Zu den Verfahrensparametern gehören insbesondere die Streckverhältnisse in Längs- und in Querrichtung (λ_{MD} und λ_{TD}),
15 die Strecktemperaturen in Längs- und in Querrichtung (T_{MD} und T_{TD}), die Folienbahngeschwindigkeit und die Art der Streckung, insbesondere diejenige in Längsrichtung der Maschine. Erhält man beispielsweise mit einer Maschine eine planare Orientierung von $\Delta p = 0,167$ mit dem Parametersatz $\lambda_{MD} = 4,8$ und $\lambda_{TD} = 4,0$, die Strecktemperaturen in Längs- und in Querrichtung $T_{MD} = 80 - 118$ °C und $T_{TD} = 80 - 125$
20 °C, so erhält man durch Erhöhung der Längsstrecktemperatur auf $T_{MD} = 80 - 125$ °C oder durch Erhöhung der Querstrecktemperatur auf $T_{TD} = 80 - 135$ °C oder durch Absenkung des Längsstreckverhältnisses auf $\lambda_{MD} = 4,3$ oder durch Absenkung des Querstreckverhältnisses auf $\lambda_{TD} = 3,7$ eine planare Orientierung Δp , die im gewünschten Bereich liegt. Die Folienbahngeschwindigkeit betrug hierbei 340 m/min und der SV-Wert des Materials etwa 730. Die genannten Daten beziehen sich bei der Längsstreckung auf
25 die sogenannte N-TEP Streckung, die sich zusammensetzt aus einem niedrig orientierenden Streckschritt (LOE = Low Orientation Elongation) und einem hoch orientierenden Streckschritt (REP = Rapid Elongation Process). Bei anderen Streckwerken

ergeben sich prinzipiell die gleichen Verhältnisse, jedoch können die Zahlenwerte für die jeweiligen Verfahrensparameter leicht verschieden sein. Die angegebenen Temperaturen beziehen sich bei der Längsstreckung auf die jeweiligen Walzentemperaturen und bei der Querstreckung auf die Folientemperaturen, die mittels Infrarot gemessen wurden.

5

Bei der nachfolgenden Thermofixierung wird die Folie etwa 0,1 bis 10 s lang bei einer Temperatur von 150 bis 250 °C gehalten. Anschließend wird die Folie in üblicher Weise aufgewickelt.

10

Bevorzugt wird/werden nach der biaxialen Streckung eine oder beide Oberfläche/n der Folie nach einer der bekannten Methoden corona- oder flammbehandelt. Die Behandlungsintensität liegt im allgemeinen im Bereich von über 45 mN/m.

15

Zur Einstellung weiterer gewünschter Eigenschaften kann die Folie zusätzlich beschichtet werden. Typische Beschichtungen sind haftvermittelnde, antistatisch, schlupfverbessernd oder dehäsiv wirkende Schichten. Es bietet sich an, diese zusätzliche Schichten über inline coating mittels wässriger Dispersionen vor dem Streckschritt in Querrichtung auf die Folie aufzubringen.

20

Die erfindungsgemäße Folie zeichnet sich durch eine hervorragende Siegelfähigkeit, eine sehr gute Stabilität gegenüber UV-Licht, ein sehr gutes Handling und durch ein sehr gutes Verarbeitungsverhalten aus. Bei der Folie siegelt die siegelfähige Deckschicht A nicht nur gegen sich selbst (fin sealing), sondern auch gegen die nicht siegelfähige Deckschicht C (lap sealing). Bei der lap sealing ist die Siegelanspringtemperatur lediglich um ca. 10 K

25

nach oben verschoben und die Siegelnahtfestigkeit ist um nicht mehr als 0,3 N/15 mm verschlechtert.

- 21 -

Außerdem besticht die Folie durch einen hervorragenden Weißgrad von > 70 (nach Berger), der der Folie zusätzlich ein sehr attraktives, werbewirksames Aussehen verleiht. Bei der Herstellung der Folie ist gewährleistet, daß das Regenerat in einer Konzentration von 20 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Folie, wieder der Extrusion
5 zugeführt werden kann, ohne daß dabei die physikalischen Eigenschaften der Folie nennenswert negativ beeinflusst werden.

Die Folie eignet sich auf Grund ihrer hervorragenden Siegeleigenschaften, auf Grund ihres sehr guten Handlings und auf Grund ihrer sehr guten Verarbeitungseigenschaften
10 insbesondere für die Verarbeitung auf schnelllaufenden Maschinen.

Darüber hinaus eignet sich die Folie auf Grund ihrer hervorragender Eigenschaftskombinationen für eine Vielzahl verschiedener Anwendungen, beispielsweise für Innenraumverkleidungen, für Messebau und Messeartikel, als Displays, für Schilder,
15 für Schutzverglasungen von Maschinen und Fahrzeugen, im Beleuchtungssektor, im Laden- und Regalbau, als Werbeartikel und als Kaschiermedium.

Aufgrund der guten UV-Stabilität eignet sich die erfindungsgemäße, weiße Folie weiterhin für Außenanwendungen, wie z.B. für Gewächshäuser, Überdachungen, Außenverkleidungen, Abdeckungen von Materialien, wie z.B. Stahlblechen, Anwendungen
20 im Bausektor und Lichtwerbepprofile, Schattenmatten, Elektroanwendungen.

Die nachstehende Tabelle (Tabelle 1) fasst die wichtigsten erfindungsgemäßen Folieneigenschaften noch einmal zusammen.

Tabelle 1

	Erfindungsgemäßer Bereich	bevorzugt	besonders bevorzugt	Einheit	Messmethode
Deckschicht A					
Siegelanspringtemperatur	< 110	< 105	< 100	°C	intern
Sieghaftfestigkeit	> 1,3	> 1,5	> 1,8	N/15 mm	intern
Mittlere Rauigkeit R _a	< 30	< 25	< 20	nm	DIN 4768, Cut-off von 0,25 mm
Messwertbereich für die Gasströmung	500-4000	800-3500	1000-3000	sec	intern
Glanz, 20 °	> 120	> 130	> 140		DIN 67 530
Deckschicht C					
COF	< 0,5	< 0,45	< 0,40		DIN 53 375
Mittlere Rauigkeit R _a	40-100	45-95	50-90	nm	DIN 4768, Cut-off von 0,25 mm
Messwertbereich für die Gasströmung	< 120	< 100	< 80	sec	intern
Glanz, 20 °	> 140	> 150	> 160		DIN 67 530
weitere Folieneigenschaften					
Weißgrad	> 70	> 75	> 80		Berger
Planare Orientierung	< 0,165	< 0,163	< 0,160		intern
Bewitterungsprüfung, UV-Stabilität	< 20 %				ISO 4892
Eigenschaftsänderung ¹⁾					

Die Folien wurden nach der Testspezifikation ISO 4892 beidseitig je 1000 Stunden pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometer der Fa. Atlas bewittert und anschließend bezüglich der mechanischen Eigenschaften, der Verfärbung, der Oberflächendefekte und des Glanzes geprüft.

Zur Charakterisierung der Rohstoffe und der Folien wurden die folgenden Messwerte benutzt:

Meßmethoden

5

SV (DCE), IV (DVE)

Die Standardviskosität SV (DCE) wird, angelehnt an DIN 53726, in Dichloressigsäure gemessen.

Die intrinsische Viskosität (IV) berechnet sich wie folgt aus der Standardviskosität

10

$$IV (DCE) = 6,67 \cdot 10^{-4} SV (DCE) + 0,118$$

Siegelanspringtemperatur (Mindestsiegeltemperatur)

Mit dem Siegelgerät HSG/ET der Firma Brugger werden heißgesiegelte Proben (Siegelnaht 20 mm x 100 mm) hergestellt, wobei die Folie bei unterschiedlichen Temperaturen mit Hilfe zweier beheizter Siegelbacken bei einem Siegeldruck von 2 bar und einer Siegeldauer von 0,5 s gesiegelt wird. Aus den gesiegelten Proben wurden Prüfstreifen von 15 mm Breite geschnitten. Die T-Siegelnahtfestigkeit wurde wie bei der Bestimmung der Siegelnahtfestigkeit gemessen. Die Siegelanspringtemperatur ist die Temperatur, bei der eine Siegelnahtfestigkeit von mindestens 0,5 N/15 mm erreicht wird.

15

20

Siegelnahtfestigkeit

Zur Bestimmung der Siegelnahtfestigkeit wurden zwei 15 mm breite Folienstreifen übereinandergelegt und bei 130 °C, einer Siegelzeit von 0,5 s und einem Siegeldruck von 2 bar (Gerät: Brugger Typ NDS, einseitig beheizte Siegelbacke) versiegelt. Die Siegelnahtfestigkeit wurde nach der T-Peel-Methode bestimmt.

25

Reibung

Die Reibung wurde nach DIN 53 375 bestimmt. Die Gleitreibungszahl wurde 14 Tage nach der Produktion gemessen.

30

Oberflächenspannung

Die Oberflächenspannung wurde mittels der sogenannten Tintenmethode (DIN 53 364) bestimmt.

5 Glanz

Der Glanz wurde nach DIN 67 530 bestimmt. Gemessen wurde der Reflektorwert als optische Kenngröße für die Oberfläche einer Folie. Angelehnt an die Normen ASTM-D 523-78 und ISO 2813 wurde der Einstrahlwinkel mit 20° eingestellt. Ein Lichtstrahl trifft unter dem eingestellten Einstrahlwinkel auf die ebene Prüffläche und wird von dieser reflektiert bzw. gestreut. Die auf den photoelektronischen Empfänger auffallenden Lichtstrahlen werden als proportionale elektrische Größe angezeigt. Der Messwert ist dimensionslos und muss mit dem Einstrahlwinkel angegeben werden.

Korngrößen auf Folienoberflächen

15 Die Bestimmung der Größenverteilung von Erhebungen auf Folienoberflächen erfolgt mit einem Rasterelektronenmikroskop und einem Bildanalysesystem. Verwendet wird das Rasterelektronenmikroskop XL30 CP der Fa. Philips mit einem integrierten Bildanalyseprogramm AnalySIS der Fa. Soft-Imaging System.

20 Für diese Messungen werden Folienproben flach auf einen Probenhalter aufgebracht. Anschließend werden diese unter einem Winkel α mit einer dünnen Metallschicht (z.B. aus Silber) schräg bedampft. Dabei ist α der Winkel zwischen Probenoberfläche und der Ausbreitungsrichtung des Metaldampfes. Durch diese Schrägbedampfung entsteht hinter der Erhebung ein Schattenwurf. Da die Schatten noch nicht elektrisch leitfähig sind, wird die Probe anschließend noch mit einem zweiten Metall (z.B. Gold) bedampft oder gesputtert, wobei die zweite Beschichtung senkrecht auf die Probenoberfläche auftrifft und somit bei der zweiten Beschichtung keine Schatten entstehen.

30 Die so präparierten Probenoberflächen werden in einem Rasterelektronenmikroskop (REM) abgebildet. Die Schatten der Erhebungen sind infolge des Materialkontrastes

der Metalle sichtbar. Die Probe wird im REM so orientiert, daß die Schatten parallel zu einem Bildrand verlaufen. Für die Bildaufnahme werden folgende Bedingungen am REM eingestellt: Sekundärelektronendetektor, Arbeitstabstand 10 mm, Beschleunigungsspannung 10 kV und Spot 4,5. Die Helligkeit und Kontrast werden so eingestellt, daß sämtliche Bildinformationen als Grauwerte dargestellt werden und die Intensität des Grundrauschens so klein ist, daß er nicht als Schatten detektiert wird. Die Länge der Schatten wird mit dem Bildanalyse ausgemessen. Der Schwellwert für die Schattenerkennung wird auf die Stelle gelegt, wo die 2. Ableitung der Grauwertverteilung des Bildes den Nullpunkt durchquert. Vor der Schattenerkennung wird das Bild mit einem NxN-Filter (Größe 3, 1 Iteration) geglättet. Durch die Setzung eines Rahmens ("frame") wird sichergestellt, daß Erhebungen, die im Bild nicht vollständig abgebildet werden, nicht mitgemessen werden. Die Vergrößerung, die Rahmengröße und die Anzahl der ausgewerteten Bildern werden so gewählt, daß insgesamt 0,36 mm² Folienoberfläche ausgewertet werden.

Die Höhe der einzelnen Erhebungen wird aus den einzelnen Schattenlängen mit folgender Beziehung errechnet:

$$h = (\tan a) * L$$

wobei h die Höhe der Erhebung, a der Bedampfungswinkel und L die Schattenlänge ist. Die so ermittelten Erhebungen werden in Klassen eingeteilt um zu einer Häufigkeitsverteilung zu kommen. Die Einteilung erfolgt in 0,05 mm breite Klassen zwischen 0 und 1 mm, wobei die kleinste Klasse (0 bis 0,05 mm) für weitere Auswertungen nicht verwendet wird. Die Durchmesser (Ausbreitung senkrecht zur Schattenwurfsrichtung) der Erhebungen werden in ähnlicher Weise in 0,2 mm breiten Klassen von 0 bis 10 mm eingestuft, wobei auch hier die kleinste Klasse für die weitere Auswertung verwendet wird.

Oberflächengasströmungszeit

Das Prinzip des Messverfahrens basiert auf der Luftströmung zwischen einer Folienseite und einer glatten Silizium-Wafer-Platte. Die Luft strömt von der Umgebung

in einen evakuierten Raum, wobei die Grenzfläche zwischen Folie und Silizium-Wafer-Platte als Strömungswiderstand dient.

Eine runde Folienprobe wird auf einer Silizium-Wafer-Platte, in deren Mitte eine Bohrung die Verbindung zu dem Rezipienten gewährleistet, gelegt. Der Rezipient wird auf einen Druck kleiner 0,1 mbar evakuiert. Bestimmt wird die Zeit in Sekunden, die die Luft benötigt, um in dem Rezipienten einen Druckanstieg von 56 mbar zu bewirken.

Messbedingungen:

Messfläche	45,1 cm ²
Anpressgewicht	1276 g
Lufttemperatur	23 °C
Luftfeuchte	50 % relative Feuchte
Gassammelvolumen	1,2 cm ³
Druckintervall	56 mbar

Planare Orientierung Δp

Die Bestimmung der planaren Orientierung erfolgt über die Messung der Brechungsindizes mit dem Abbe-Refraktometer nach folgendem Verfahren:

Probengröße und Probenlänge: 60 bis 100 mm

Probenbreite: entspricht Prismenbreite von 10 mm

Zur Bestimmung von n_{MD} und $n_a (=n_z)$ muss die zu messende Probe aus der Folie ausgeschnitten werden, bei der die Laufkante der Probe exakt mit der TD-Richtung übereinstimmen muss. Zur Bestimmung von n_{TD} und $n_a (=n_z)$ muss die zu messende Probe aus der Folie ausgeschnitten werden, bei der die Laufkante der Probe exakt mit der MD-Richtung übereinstimmen muss. Die Proben sind aus der Mitte der Folienbahn zu entnehmen. Es ist dafür Sorge zu tragen, daß das Abbe-Refraktometer eine Temperatur von 23 °C hat. Auf das vor der Messung gut gesäuberte untere Prisma wird mit Hilfe eines Glasstabes ein wenig Dijodmethan ($N=1,745$) bzw. Dijodmethan-Bromnaphthalin-Gemisch aufgetragen. Der Brechungsindex des Gemisches muss größer als 1,685 sein. Darauf wird zuerst die in TD-Richtung ausgeschnittene Probe aufgelegt, so daß die gesamte Prismenoberfläche bedeckt ist. Mit Hilfe eines

Papiertaschentuches wird nun die Folie fest auf das Prisma aufgebügelt, so daß die Folie fest und glatt aufliegt. Die überflüssige Flüssigkeit muss abgesaugt werden. Danach wird ein wenig von der Messflüssigkeit auf die Folie getropft. Das zweite Prisma wird heruntergeklappt und fest angedrückt. Nun wird mit Hilfe der rechten Rändelschraube die Anzeigeskala so weit gedreht, bis im Bereich 1,62 bis 1,68 ein Übergang von hell auf dunkel im Sichtfenster zu sehen ist. Ist der Übergang von hell auf dunkel nicht scharf, werden mit Hilfe der oberen Rändelschraube die Farben so zusammengeführt, daß nur eine helle und eine dunkle Zone sichtbar ist. Die scharfe Übergangslinie wird mit Hilfe der unteren Rändelschraube in den Kreuzungspunkt der beiden (im Okular) diagonalen Linien gebracht. Der nun in der Messskala angezeigte Wert wird abgelesen und in das Messprotokoll eingetragen. Dies ist der Brechungsindex in Maschinenrichtung n_{MD} . Nun wird die Skala mit der unteren Rändelschraube so weit verdreht, daß der im Okular sichtbare Bereich zwischen 1,49 und 1,50 zu sehen ist.

Jetzt wird der Brechungsindex in n_a bzw. n_z (in Dickenrichtung der Folie) ermittelt. Damit der nur schwach sichtbare Übergang besser zu sehen ist, wird auf das Okular eine Polarisationsfolie gelegt. Diese ist solange zu drehen, bis der Übergang deutlich zu sehen ist. Es gilt das gleiche wie bei der Bestimmung von n_{MD} . Ist der Übergang von hell auf dunkel nicht scharf (farbig), dann werden mit Hilfe der oberen Rändelschraube die Farben zusammengeführt, so daß ein scharfer Übergang zu sehen ist. Diese scharfe Übergangslinie wird mit Hilfe der unteren Rändelschraube in den Kreuzungspunkt der beiden diagonalen Linien gebracht und den auf der Skala angezeigten Wert abgelesen und in die Tabelle eingetragen.

Anschließend wird die Probe gedreht und die entsprechenden Brechungsindizes n_{MD} und n_a ($=n_z$) der anderen Oberflächenseite gemessen und in eine entsprechende Tabelle eingetragen.

Nach der Bestimmung der Brechungsindizes in MD-Richtung bzw. in Dickenrichtung wird der in MD-Richtung herausgeschnittene Probenstreifen aufgelegt und entsprechend die Brechungsindizes n_{TD} und n_a ($=n_z$) bestimmt. Der Streifen wird umgedreht und die Werte für die B-Seite gemessen. Die Werte für die A-Seite und die

- 28 -

B-Seite werden zu mittleren Brechungswerten zusammengefasst. Die Orientierungswerte werden dann aus den Brechungsindizes nach den folgenden Formeln berechnet:

$$\Delta n = n_{MD} - n_{TD}$$

$$5 \quad \Delta p = (n_{MD} + n_{TD})/2 - n_z$$

$$n_{av} = (n_{MD} + n_{TD} + n_z)/3$$

Oberflächendefekte

Die Oberflächendefekte werden visuell bestimmt.

10

Mechanische Eigenschaften

Der E-Modul, die Reissfestigkeit und die Reissdehnung werden in Längs- und Querrichtung nach ISO 527-1-2 gemessen.

15 Bewitterung (beidseitig), UV-Stabilität

Die UV-Stabilität wird nach der Testspezifikation ISO 4892 wie folgt geprüft:

	Testgerät	:	Atlas Ci 65 Weather Ometer
	Testbedingungen	:	ISO 4892, d. h. künstliche Bewitterung
20	Bestrahlungszeit	:	1000 Stunden (pro Seite)
	Bestrahlung	:	0,5 W/m ² , 340 nm
	Temperatur	:	63 °C
	Relative Luftfeuchte	:	50 %
	Xenonlampe	:	innerer und äußerer Filter aus Borosilikat
25	Bestrahlungszyklen	:	102 Minuten UV-Licht, dann 18 Minuten UV-Licht mit Wasserbesprühung der Proben dann wieder 102 Minuten UV-Licht usw.

Farbveränderung

Die Farbveränderung der Proben nach der künstlichen Bewitterung wird mit einem Spektralphotometer nach DIN 5033 gemessen.

- 5 Je größer die numerische Abweichung vom Standard ist, desto größer ist der Farbunterschied. Numerische Werte von 0,3 sind vernachlässigbar und bedeuten, daß keine signifikante Farbänderung vorliegt.

Gelbwert

- 10 Der Gelbwert (YID) ist die Abweichung von der Farblosigkeit in Richtung "Gelb" und wird gemäß DIN 6167 gemessen. Gelbwert (YID) von < 5 sind nicht sichtbar.

Beispiele**15 Beispiel 1**

- Chips aus Polyethylenterephthalat (hergestellt über das Umesterungsverfahren mit Mn als Umesterungskatalysator, Mn-Konzentration: 100 ppm) wurden bei 150 °C auf eine Restfeuchte von unterhalb 100 ppm getrocknet und dem Extruder für die Basisschicht B zugeführt. Ebenfalls wurden Chips aus Polyethylenterephthalat und einem Füllstoff
20 dem Extruder für die nicht siegelfähige Deckschicht C zugeführt.

- Daneben wurden Chips aus einem linearen Polyester hergestellt, der aus einem amorphen Copolyester mit 78 Mol.-% Ethylenterephthalat und 22 Mol.-% Ethylenisophthalat besteht (hergestellt über das Umesterungsverfahren mit Mn als
25 Umesterungskatalysator, Mn-Konzentration: 100 ppm). Der Copolyester wurde bei einer Temperatur von 100 °C auf eine Restfeuchte von unterhalb 200 ppm getrocknet und dem Extruder für die siegelfähige Deckschicht A zugeführt.

- Der UV-Stabilisator 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)-oxyphenol (®Tinuvin
30 1577) wird in Form von Masterbatchen zudosiert. Die Masterbatche setzten sich aus

- 30 -

5 Gew.-% ®Tinuvin 1577 als Wirkstoffkomponente und 95 Gew.-% Polyethylenterephthalat (für die Deckschicht C), bzw. 95 Gew.-% Polyethylenisophthalat (für die Deckschicht A) zusammen. Das 5 Gew.-%ige ®Tinuvin 1577 wird lediglich den beiden dicken Deckschichten 20 Gew.-% der jeweiligen Masterbatche über die Masterbatch-Technologie zudosiert werden.

Als Weißpigment wurde Bariumsulfat eingesetzt.

Es wurde durch Koextrusion und anschließende stufenweise Orientierung in Längs- und Querrichtung eine weiße dreischichtige Folie mit ABC-Aufbau und einer Gesamtdicke von 20 µm hergestellt. Die Dicke der jeweiligen Deckschichten ist der Tabelle 2 zu entnehmen.

Deckschicht A, Mischung aus:

15	20,0 Gew.-%	UV-Masterbatch auf Basis von Polyethylenisophthalat
	77,0 Gew.-%	Copolyester mit einem SV-Wert von 800
	3,0 Gew.-%	Masterbatch aus 97,75 Gew.-% Copolyester (SV-Wert von 800) und 1,0 Gew.-% ®Sylobloc 44 H (synthetisches SiO ₂ der Fa. Grace) und 1,25 Gew.-% ®Aerosil TT 600 (pyrogenes SiO ₂ der Fa. Degussa)
20		

Basisschicht B:

	80,0 Gew.-%	Polyethylenterephthalat mit einem SV-Wert von 800
	20,0 Gew.-%	Bariumsulfat einer mittleren Korngröße von 0,5 µm

Deckschicht C, Mischung aus:

	20,0 Gew.-%	UV-Masterbatch auf Basis von Polyethylenterephthalat
	68 Gew.-%	Polyethylenterephthalat mit einem SV-Wert von 800
	12 Gew.-%	Masterbatch aus 97,75 Gew.-% Copolyester (SV-Wert von 800) und 1,0 Gew.-% ®Sylobloc 44 H (synthetisches SiO ₂ der Fa.
30		

Grace) und 1,25 Gew.-% ®Aerosil TT 600 (kettenartiges SiO₂ der Fa. Degussa).

Die Herstellungsbedingungen in den einzelnen Verfahrensschritten waren:

5	Längsstreckung:	Temperatur:	80 - 125°C
		Längsstreckverhältnis:	4,2
	Querstreckung:	Temperatur:	80 - 135 °C
		Querstreckverhältnis:	4,0
	Fixierung:	Temperatur:	230 °C
10	Dauer:		3 s

Die Folie hatte die geforderten guten Siegeleigenschaften, den gewünschten Weißgrad und zeigt das gewünschte Handling und das gewünschte Verarbeitungsverhalten. Der Folienaufbau und die erzielten Eigenschaften derart hergestellter Folien sind in den Tabellen 2 bis 4 (Folienaufbau und Ergebnisse) dargestellt.

Die Folie in diesem und in allen nachfolgenden Beispielen wurden nach der Testspezifikation ISO 4892 beidseitig je 1000 Stunden pro Seite mit dem Atlas Ci 65 Weather Ometer der Fa. Atlas bewittert und anschließend bezüglich der mechanischen Eigenschaften, der Verfärbung, der Oberflächendefekte und des Glanzes geprüft.

Beispiel 2

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde die Deckschichtdicke der siegelfähigen Schicht A von 1,5 auf 2,0 µm angehoben. Die Siegeleigenschaften haben sich hierdurch verbessert, insbesondere ist die Siegelnahtfestigkeit deutlich größer geworden (siehe Tabellen 2 bis 4).

Beispiel 3

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde jetzt eine 30 µm dicke Folie produziert. Die Deckschichtdicke der siegelfähigen Schicht A betrug 2,5 µm und diejenige der nicht

siegelfähigen Schicht B betrug 2,0 µm. Die Siegeleigenschaften haben sich hierdurch nochmals verbessert, insbesondere ist die Siegelnahtfestigkeit deutlich größer geworden. Das Handling der Folie hat sich dabei tendenziell verbessert (siehe Tabellen 2 bis 4).

5

Beispiel 4

Im Vergleich zu Beispiel 3 wurde das Copolymere für die siegelfähige Deckschicht A geändert. Anstelle des amorphen Copolyesters mit 78 Mol.-% Polyethylterephthalat und 22 Mol.-% Ethylterephthalat wurde jetzt ein amorpher Copolyester mit 70 Mol.-% Polyethylterephthalat und 30 Mol.-% Ethylterephthalat verwendet. Der Rohstoff wurde auf einem Zweischneckenextruder mit Entgasung verarbeitet, ohne daß er vorgetrocknet werden musste. Die Deckschichtdicke der siegelfähigen Schicht A betrug wiederum 2,5 µm und diejenige der nicht siegelfähigen Schicht B betrug 2,0 µm. Die Siegeleigenschaften haben sich hierdurch verbessert, insbesondere ist die Siegelnahtfestigkeit deutlich größer geworden. Zur Erzielung eines guten Handlings und eines guten Verarbeitungsverhalten der Folie wurde die Pigmentkonzentration in den beiden Deckschichten leicht angehoben (siehe Tabellen 2 bis 4).

10

15

Vergleichsbeispiel 1

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde jetzt die siegelfähige Deckschicht A nicht pigmentiert. Die Siegeleigenschaften haben sich zwar hierdurch etwas verbessert, jedoch ist das Handling der Folie und das Verarbeitungsverhalten inakzeptabel schlechter geworden (siehe Tabellen 2 und 3).

20

Vergleichsbeispiel 2

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde jetzt die siegelfähige Deckschicht A so hoch pigmentiert wie die nicht siegelfähige Deckschicht C. Das Handling und die Verarbeitungseigenschaften der Folie haben sich durch diese Maßnahme verbessert, jedoch sind die Siegeleigenschaften deutlich schlechter geworden (siehe Tabellen 2 und 3).

25

30

V rgleichsbeispiel 3

Im Vergleich zu Beispiel 1 wurde jetzt die nicht siegelfähige Deckschicht A deutlich weniger pigmentiert. Das Handling der Folie und das Verarbeitungsverhalten der Folie ist deutlich schlechter geworden (siehe Tabellen 2 und 3).

5

Vergleichsbeispiel 4

Es wurde Beispiel 1 aus der **EP-A 0 035 835** nachgearbeitet. Das Siegelverhalten der Folie, das Handling der Folie und das Verarbeitungsverhalten der Folie ist schlechter als bei den erfindungsgemäßen Beispielen (siehe Tabellen 2 und 3).

-34-

Tabelle 2

Bei- spiel	Folien- dicke μm	Folien- aufbau	Schichtdicken μm			Pigmente in den Schichten			mittlerer Pigment- Durchmesser in Schichten μm			Pigmentkonzentrationen ppm		
			A	B	C	A	B	C	A	B	C	A	B	C
B 1	20	ABC	1,5	17	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	300 375	0	1200 1500
B 2	20	ABC	2,0	16,5	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	300 375	0	1200 1500
B 3	30	ABC	2,5	25,5	2,0	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	300 375	0	1200 1500
B 4	30	ABC	2,5	25,5	2,0	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	400 500	0	1500 1875
VB 1	20	ABC	1,5	17	1,5	kein	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600			2,5 0,04		0	1200 1500
VB 2	20	ABC	1,5	17	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	300 375	0	1200 1500
VB 3	20	ABC	1,5	17	1,5	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	kein	Sylobloc 44 H Aerosil TT 600	2,5 0,04		2,5 0,04	300 375	0	600 750
VB 4	15	AB	2,25	12,75		Gasil 35 EP-A-035 835	kein		3			2500	0	

5

10

Tabelle 3

Bei- spiel	Siegel- anspring- temperatur °C	Siegel- naht- festigkeit N/15mm	Reibung COF	Mittlere Rauigkeit R _a nm	Messwerte für die Gasströmung sec	Konstanten A/B		Δp	Glanz 20°		Wickel- verhalten und Handling	Verar- beitungs- verhalten
	A-Seite gegen A-Seite	A-Seite gegen C-Seite	C-Seite gegen C-Seite	A- Seite	C- Seite	A- Seite	C- Seite		A- Seite	C- Seite		
B 1	100	2,0	0,45	25	65	1200	80	0,5	0,165	140	170	++
B 2	98	2,7	0,45	26	65	1280	80	0,5	0,165	140	170	++
B 3	95	3,0	0,41	23	61	1110	80	0,5	0,165	130	170	++
B 4	85	3,3	0,40	23	65	1300	60	0,5	0,165	130	170	++
VB 1	98	2,1	0,45	10	65	10000	80		0,165	160	170	-
VB 2	110	1,0	0,45	65	65	80	80		0,165	130	170	-
VB 3	100	2,0	0,45	25	37	1200	150		0,165	160	190	-
VB 4	115	0,97	>2	70	20	50	>5000					-

5

10

15 Zeichenerklärung beim Wickelverhalten, Handling und beim Verarbeitungsverhalten der Folien:

- ++: keine Klebeneigung an Walzen oder anderen mechanischen Teilen, keine Blockprobleme beim Wickeln und bei der Verarbeitung auf Verpackungsmaschinen, niedrige Herstellkosten
- : Klebeneigung an Walzen oder anderen mechanischen Teilen, Blockprobleme beim Wickeln und bei der Verarbeitung auf Verpackungsmaschinen, hohe Herstellkosten durch aufwendiges Handling der Folie in den Maschinen

Tabelle 4

Bei- spiel	Bewitterung	E-Modul		Reiß- festigkeit		Reißdehnung		Gesamt- farbänderung E	Oberflächen- defekte	Glanz	
		längs	quer	längs	quer	längs	quer			A-Seite	C-Seite
B 1	Vorher	4300	5800	220	280	170	100			140	170
	Nachher	4100	5480	190	270	150	90	0,2	keine	132	165
B 2	Vorher	4200	5600	215	260	170	100			140	170
	Nachher	4030	5400	190	250	150	90	0,25	keine	138	165
B 3	Vorher	4500	5700	230	280	175	105			130	170
	Nachher	4000	5350	196	255	150	89	0,24	keine	138	155
B 4	Vorher	4300	5800	220	275	178	111			130	170
	Nachher	3900	5360	192	248	148	92	0,27	keine	138	165

5 Patentansprüche

1. Weiße, siegelfähige, UV stabilisierte, biaxial orientierte Polyesterfolie mit mindestens einer Basisschicht B, einer siegelfähigen Deckschicht A und einer weiteren Deckschicht C, wobei die siegelfähige Deckschicht A eine Siegelanspringtemperatur von ≤ 110 °C und eine Siegelnahtfestigkeit von $\geq 1,3$ N/15 mm aufweist
2. Polyesterfolie gemäß Anspruch 1 dadurch gekennzeichnet, daß die siegelfähige Deckschicht A eine mittlere Rauigkeit R_a kleiner 30 nm aufweist.
3. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 2, dadurch gekennzeichnet, daß die siegelfähige Deckschicht A einen Messwertbereich für die Gasströmung von 500 - 4000 s aufweist.
4. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß die siegelfähige Deckschicht A einen Glanz von größer 120 (Messwinkel 20°) aufweist.
5. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß die nicht-siegelfähige Deckschicht C einen Reibungskoeffizienten COF kleiner 0,5 aufweist.
6. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die nicht-siegelfähige Deckschicht C eine mittlere Rauigkeit R_a von 40 - 100 nm aufweist.

7. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß die nicht-siegelfähige Deckschicht C einen Messwertbereich für die Gasströmung von kleiner 120 s aufweist.
- 5 8. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die nicht-siegelfähige Deckschicht C einen Glanz von kleiner 100 (Messwinkel 20°) aufweist.
- 10 9. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyesterfolie einen Weißgrad von größer 70 aufweist.
10. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyesterfolie eine planare Orientierung von kleiner 0,165 hat.
- 15 11. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Polyesterfolie die Bewitterungsprüfung/UV-Stabilität nach ISO 4892 mit kleiner 20 % besteht.
- 20 12. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 11, dadurch gekennzeichnet, daß die nicht-siegelfähige Deckschicht C eine Anzahl von Erhebungen N pro mm² Folienoberfläche aufweist, die mit der jeweiligen Höhe h über folgende Gleichungen korreliert sind:
- $$A_{C1} - B_{C1} * \log h/\mu\text{m} < N_C/\text{mm}^2 < A_{C2} - B_{C2} * \log h/\mu\text{m}$$
- 25 $0,01 \mu\text{m} < h < 10 \mu\text{m}$
- $$A_{C1} = 0,29 \quad B_{C1} = 3,30$$
- $$A_{C2} = 1,84; \quad B_{C2} = 2,70$$
- 30 13. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 12, wobei die Basisschicht B zu mindestens 90 Gew.-% aus einem thermoplastischen

Polyester aus der Reihe PET, PEN, PCDT und PENBB besteht und die anderen Monomereinheiten aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren stammen.

- 5 14. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 13, wobei die Basisschicht B zu mindestens 95 Gew.-% aus einem thermoplastischen Polyester aus der Reihe PET und PEN besteht.
- 10 15. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 14, wobei die siegelfähige Deckschicht A auf Basis von Polyestercopolymeren aufgebaut ist und im wesentlichen aus Ethylenterephthalat-Einheiten (40 bis 95 Mol-%) und Ethylenisophthalat-Einheiten (60 bis 5 Mol-%) besteht und die anderen Monomereinheiten aus anderen aliphatischen, cycloaliphatischen oder aromatischen Diolen bzw. Dicarbonsäuren stammen.
- 15 16. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 15, wobei die siegelfähige Deckschicht A 0,2 µm bis 4,0 µm dick ist.
- 20 17. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 16, wobei die nicht siegelfähige Deckschicht C zu mindestens 95 Gew.-% aus einem thermoplastischen Polyester aus der Reihe PET, PEN, PCDT und PENBB besteht.
- 25 18. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 17, wobei die nicht siegelfähige Deckschicht C 0,2 µm bis 4,0 µm dick ist.
19. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 18, wobei der UV-Stabilisator in der nicht siegelfähigen Decksicht C enthalten ist.

- 40 -

20. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 19, wobei die Konzentration des UV-Stabilisators im Bereich von 0,01 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Schicht in der der UV-Stabilisator eingearbeitet ist.
- 5 21. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 20, wobei der UV-Stabilisator ausgewählt ist unter 2-Hydroxybenzotriazolen und Triazinen.
- 10 22. Polyesterfolie gemäß Anspruch 21 enthaltend 0,01 bis 5,0 Gew.-% 2-(4,6-Diphenyl-1,3,5-triazin-2-yl)-5-(hexyl)oxy-phenol oder 0,01 bis 5,0 Gew.-% 2,2'-Methylen-bis(6-(2H-benzotriazol-2-yl)-4-(1,1,2,2-tetramethylpropyl)-phenol als UV-Stabilisator.
- 15 23. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 22, wobei das Weißpigment in der Basisschicht B enthalten ist.
- 20 24. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 23, wobei das Weißpigment ausgewählt ist aus einem oder mehreren der Weißpigmente Titandioxid, Bariumsulfat, Calciumcarbonat, Kaolin und Siliciumdioxid.
- 25 25. Polyesterfolie nach Anspruch 24, wobei das Weißpigment Bariumsulfat ist.
26. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 25, wobei die Folie 12 bis 40 Gew.-% Weißpigment, bezogen auf das Gewicht der Schicht in welcher das Weißpigment eingearbeitet ist.
27. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 26, wobei das Weißpigment Bariumsulfat eine mittlere Korngröße von 0,3 bis 0,8 µm besitzt.

28. Polyesterfolie gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 27, wobei die Folie noch jeweils eine Zwischenschicht zwischen der Basisschicht B und den Deckschichten A und C aufweist.
- 5 29. Verfahren zur Herstellung einer Polyesterfolie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Polymere bzw. die Polymermischung der einzelnen Schichten in einem Extruder komprimiert und verflüssigt werden, die Schmelzen dann gleichzeitig durch eine Flachdüse (Breitschlitzdüse) gepresst werden, die ausgepresste mehrschichtige Folie auf einer oder mehreren Abzugswalzen
10 abgezogen wird, die so erhaltene Vorfolie anschließend biaxial verstreckt und thermofixiert wird und gegebenenfalls an der zur Behandlung vorgesehenen Oberflächensicht corona- oder flammbehandelt wird.
- 15 30. Verfahren gemäß Anspruch 29, dadurch gekennzeichnet, daß die Zugabe des Weißpigments über die Masterbatch-Technologie durchgeführt wird.
31. Verfahren gemäß Anspruch 29, dadurch gekennzeichnet, daß die Zugabe des UV-Stabilisators über die Masterbatch-Technologie durchgeführt wird.
- 20 32. Verwendung einer Folie gemäß den Ansprüchen 1 bis 28 als Innenraumverkleidung, für Messebau und Messeartikel, als Display, für Schilder, für Schutzverglasungen von Maschinen und Fahrzeugen, im Beleuchtungssektor, im Laden- und Regalbau, als Werbeartikel, als Kaschiermedium, für Gewächshäuser, Überdachungen, Außenverkleidungen,
25 Abdeckungen von Materialien, im Bausektor, als Lichtwerbeprofil, Schattenmatten oder in Elektroanwendungen.
-

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int l Application No
PCT/EP 01/01303

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 B32B27/36 B32B27/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 B32B G11B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)
EPO-Internal, PAJ, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>WO 97 37849 A (ICI PLC ;BRENNAN WILLIAM JAMES (GB); RHOADES GARY VICTOR (GB); LAW) 16 October 1997 (1997-10-16)</p> <p>page 1, line 24-36 page 2, line 13-18 page 5, line 18-21 page 6, line 1-7 page 6, line 31-33G8 -page 11-31 page 9, line 22-32 page 14, line 17-22 example 2 figure 3</p> <p style="text-align: center;">--- -/--</p>	<p>1,9, 13-16, 23,24, 26,28,29</p>

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- * & * document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 June 2001

Date of mailing of the international search report

13/06/2001

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Stabel, A

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int'l Application No
PCT/EP 01/01303

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>EP 0 947 982 A (MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH) 6 October 1999 (1999-10-06)</p> <p>page 2, line 47 -page 3, line 21 page 4, line 21 -page 6, line 5 table 1</p> <p style="text-align: center;">---</p>	<p>1-3, 6, 12-18, 24, 29</p>
A	<p>EP 0 952 176 A (MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH) 27 October 1999 (1999-10-27)</p> <p>page 2, line 1-7 page 4, line 32 -page 6, line 58 tables page 10, line 1 -page 12, line 14</p> <p style="text-align: center;">---</p>	<p>2, 4-6, 8, 10, 12-18, 24, 25, 29</p>
A	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 2000, no. 01, 31 January 2000 (2000-01-31) & JP 11 268214 A (TORAY IND INC), 5 October 1999 (1999-10-05) abstract</p> <p style="text-align: center;">---</p>	<p>1, 13-15, 19, 32</p>
A	<p>PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 689 (C-1143), 16 December 1993 (1993-12-16) & JP 05 230238 A (TOYOBO CO LTD), 7 September 1993 (1993-09-07) abstract</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	<p>1-3, 9, 24, 32</p>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 01/01303

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 9737849	A	16-10-1997	AU 1935097 A	29-10-1997
			CN 1214653 A,B	21-04-1999
			DE 69703151 D	26-10-2000
			DE 69703151 T	23-05-2001
			EP 0892721 A	27-01-1999
EP 0947982	A	06-10-1999	DE 19814710 A	07-10-1999
			JP 11309826 A	09-11-1999
EP 0952176	A	27-10-1999	DE 19817841 A	28-10-1999
			JP 11320789 A	24-11-1999
JP 11268214	A	05-10-1999	NONE	
JP 05230238	A	07-09-1993	NONE	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/01303

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 7 B32B27/36 B32B27/18

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 7 B32B G11B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, PAJ, WPI Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	<p>WO 97 37849 A (ICI PLC ;BRENNAN WILLIAM JAMES (GB); RHOADES GARY VICTOR (GB); LAW) 16. Oktober 1997 (1997-10-16)</p> <p>Seite 1, Zeile 24-36 Seite 2, Zeile 13-18 Seite 5, Zeile 18-21 Seite 6, Zeile 1-7 Seite 6, Zeile 31-33G8 -Seite 11-31 Seite 9, Zeile 22-32 Seite 14, Zeile 17-22 Beispiel 2 Abbildung 3</p> <p style="text-align: center;">---</p> <p style="text-align: center;">-/--</p>	<p>1,9, 13-16, 23,24, 26,28,29</p>



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

E älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

L Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

O Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

P Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

X Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

Y Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

Z Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

1. Juni 2001

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

13/06/2001

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040. Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Stabel, A

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/01303

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie:	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	EP 0 947 982 A (MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH) 6. Oktober 1999 (1999-10-06) Seite 2, Zeile 47 -Seite 3, Zeile 21 Seite 4, Zeile 21 -Seite 6, Zeile 5 Tabelle 1 ---	1-3,6, 12-18, 24,29
A	EP 0 952 176 A (MITSUBISHI POLYESTER FILM GMBH) 27. Oktober 1999 (1999-10-27) Seite 2, Zeile 1-7 Seite 4, Zeile 32 -Seite 6, Zeile 58 Tabellen Seite 10, Zeile 1 -Seite 12, Zeile 14 ---	2,4-6,8, 10, 12-18, 24,25,29
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 2000, no. 01, 31. Januar 2000 (2000-01-31) & JP 11 268214 A (TORAY IND INC), 5. Oktober 1999 (1999-10-05) Zusammenfassung ---	1,13-15, 19,32
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 017, no. 689 (C-1143), 16. Dezember 1993 (1993-12-16) & JP 05 230238 A (TOYOCO CO LTD), 7. September 1993 (1993-09-07) Zusammenfassung -----	1-3,9, 24,32

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 01/01303

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 9737849 A	16-10-1997	AU 1935097 A	29-10-1997
		CN 1214653 A,B	21-04-1999
		DE 69703151 D	26-10-2000
		DE 69703151 T	23-05-2001
		EP 0892721 A	27-01-1999
EP 0947982 A	06-10-1999	DE 19814710 A	07-10-1999
		JP 11309826 A	09-11-1999
EP 0952176 A	27-10-1999	DE 19817841 A	28-10-1999
		JP 11320789 A	24-11-1999
JP 11268214 A	05-10-1999	KEINE	
JP 05230238 A	07-09-1993	KEINE	